

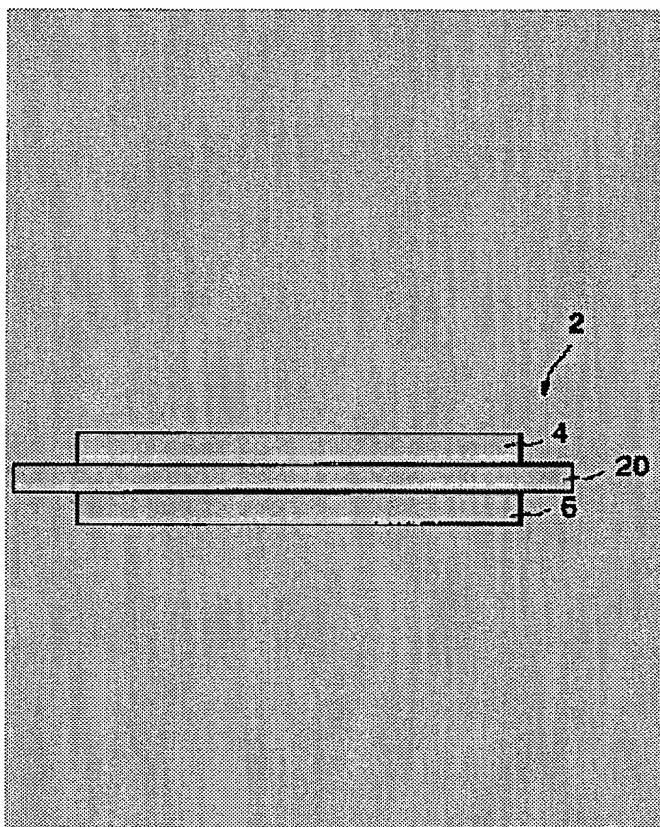
FUEL ELECTRODE FOR SOLID ELECTROLYTE TYPE FUEL CELL

Patent number: JP2001023648
Publication date: 2001-01-26
Inventor: YASUDA ISAMU; MATSUZAKI YOSHIO
Applicant: TOKYO GAS CO LTD
Classification:
- **International:** H01M4/86; H01M8/12
- **European:**
Application number: JP19990197893 19990712
Priority number(s):

Abstract of JP2001023648

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a fuel electrode for solid electrolyte type fuel cell having a high cell capability.

SOLUTION: A plate-like single cell 2 is provided with a fuel electrode 4 placed on one surface of a solid electrolyte layer, and an air electrode 6 placed on the other surface. A solid electrolyte type fuel cell is structured by electrically and serially connecting adjacent individual single cells each other, and laminating separators distributing fuel and oxidizer gas alternately for the individual single cells. The fuel electrode 4 is structured by including metal particles and ceramics particles comprising $\text{Ce}_{1-x}\text{M}_x\text{O}_y$ (M is a trivalent rare earth, $0.05 \leq x \leq 0.15$, and $y = 2 - 0.5x$). This realizes a fuel electrode with a high electrode activity, thereby improving fuel cell performance of the solid electrolyte fuel cell.



Data supplied from the esp@cenet database - Patent Abstracts of Japan

BEST AVAILABLE COPY

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開2001-23648

(P2001-23648A)

(43)公開日 平成13年1月26日(2001.1.26)

(51)Int.Cl.

識別記号

FI

テーマコード(参考)

H01M 4/86
8/12H01M 4/86
8/12T 5H018
5H026

審査請求 未請求 請求項の数5 OL (全4頁)

(21)出願番号 特願平11-197893

(22)出願日 平成11年7月12日(1999.7.12)

(71)出願人 000220262

東京瓦斯株式会社

東京都港区海岸1丁目5番20号

(72)発明者 安田 勇

埼玉県久喜市北1-12-4-311

(72)発明者 松崎 良雄

東京都荒川区南千住3-28-70-901

(74)代理人 100077827

弁理士 鈴木 弘男

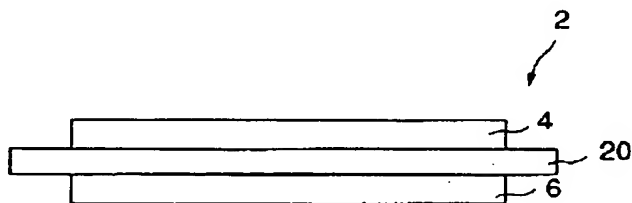
Fターム(参考) 5H018 AA06 AS02 CC06 DD08 EE02
EE13 HH00

5H026 AA06 CC03 CX04 EE02 EE13

(54)【発明の名称】 固体電解質型燃料電池の燃料極

(57)【要約】

【課題】 電池性能の高い固体電解質型燃料電池の燃料極を提供すること。

【解決手段】 固体電解質層10の片面に燃料極4、その反対面に空気極6を配置した平板状単電池2と、隣接するそれぞれ単電池同士を電氣的に直列に接続し、かつ各単電池に燃料と酸化剤ガスを分配するセパレータとを交互に積層してなる固体電解質型燃料電池の燃料極において、該燃料極4を金属粒子と $Ce_{1-x}MxO_y$ 、(Mは3価の希土類、 $0.05 \leq X \leq 0.15$ 、 $y = 2 - 0.5X$)からなるセラミックス粒子を含んで構成した。これにより、電極活性を高くした燃料極を実現でき、固体電解質燃料電池の電池性能を向上させることができる。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 固体電解質層の片面に燃料極、その反対面に空気極を配置した単電池と、隣接するそれぞれの単電池同士を電氣的に直列に接続し、かつ各単電池に燃料と酸化剤ガスを分配するセパレータとを交互に積層してなる固体電解質型燃料電池の燃料極において、

該燃料極がセラミックス成分

$Ce_{1-x}MxO_y$ を含み

M は 3 価の希土類

$0.05 \leq x \leq 0.15$

$y = 2 - 0.5x$

としたことを特徴とする固体電解質型燃料電池の燃料極。

【請求項 2】 前記 M は、Gd あるいは Sm であることを特徴とした請求項 1 に記載の固体電解質型燃料電池の燃料極。

【請求項 3】 前記燃料極が金属粒子と請求項 1 または 2 に記載のセラミックスを含むサーメットからなることを特徴とする固体電解質型燃料電池の燃料極。

【請求項 4】 前記金属が Ni であることを特徴とした請求項 4 に記載の固体電解質型燃料電池の燃料極。

【請求項 5】 請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の燃料極を備えたことを特徴とする固体電解質型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、電池性能を高めた固体電解質型燃料電池の燃料極に関する。

【0002】

【従来の技術】 最近省資源の観点からだけでなく、環境に対する影響の観点からもエネルギー源としての燃料電池が注目されている。固体電解質型燃料電池 (SOFC) は固体電解質層の片面に燃料極、その反対面に空気極を配置した単電池と、隣接するそれぞれ単電池同士を電氣的に直列に接続し、かつ各単電池に燃料と酸化剤ガスを分配するセパレータとを交互に積層して構成されていて、燃料電池の中でも動作温度が 650 ～ 1000℃ と高いことから発電効率が高く、構成材料がすべて固体であるため取扱いが容易であるなどの利点があるため、開発が進んでいる。

【0003】 図 1 に、固体電解質型燃料電池の平板状単電池 2 (セル) の構成を概略的に示す。平板状単電池 2 は、固体電解質 20 を中心とし、その固体電解質 20 の片面 (図 1 において固体電解質 20 の上側) に燃料極 4 を形成し、反対側の面に空気極 6 を形成している。

【0004】 固体電解質 20 は、8YSZ (YSZ とはイットリアをドープした安定化ジルコニア) または 3YSZ が用いられており、燃料極 4 に水素 (H_2)、メタン (CH_4) などの燃料ガスを供給し、空気極 6 に空気、酸素 (O_2) などの酸化剤ガスを供給すると、両極間に起電力が発生する。発電時に燃料極 4、および空気

(2)

2

極 6 で生じている反応を次に示す。

【0005】 A (燃料極) : $O^{2-} + H_2 \rightarrow H_2O + 2e$ 、 $O^{2-} + CO \rightarrow CO_2 + 2e$

B (空気極) : $O + 2e \rightarrow O^{2-}$

このように燃料極 4 における反応は、イオンの導電性が重要であり、通常図 7 に示すように Ni-YSZ のサーメットなど Ni 粒子、または NiO 粒子と高いイオン導電性を有している YSZ 粒子とを機械的に混合し、これを固体電解質層 2 上に塗布し焼成して形成していた。

【0006】 ところが燃料極 4 を構成している Ni-YSZ のサーメットにおける YSZ は、電子導電性に乏しいことがわかっている。この種の固体電解質燃料電池において、燃料極 4 の電子導電性とイオン導電性の双方の良否が電池性能に大きな影響を与えることが知られており、イオンも電子も通すことが可能なセラ系系の混合導電体も用いられてきている。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら従来の燃料極は、イオン導電性が最も高くなるように設定されていた。例えば、セラミック成分として、サマリウム系の $Ce_{0.8}Sm_{0.2}O_{1.9}$ が用いられていた。それは燃料極において、金属である Ni 粒子の電子導電性が大きく、Ni 粒子などに混入されるセラミック成分が電子導電性を有していることに対してあまり重要視されておらず、従来高い要求がなされていなかったためである。

【0008】 上述したように、燃料極においてイオン導電性の高さのみで電池性能が向上するのではなく、同時に電子導電性が高いことも重要であり、イオン導電性のみに着目して燃料電池のセラミック成分の組成を設定した場合では、電子導電性が低下してしまい、燃料電池全体としての性能が低くなっていた。

【0009】 本発明は上述の点に鑑みてなされたもので、燃料電池の電池性能を向上させるため、電極活性の高い固体電解質型燃料電池の燃料極を提供することを目的とする。

【0010】

【課題を解決するための手段】 そこで本発明者らは、燃料極の電極活性を高め、燃料電池の電池性能を向上させるには、燃料極を構成するセラミックにおいてイオン導電性が高いことに加え、電子導電性が良好なことが重要であることに着目し、固体電解質燃料電池の燃料極のセラミック成分を、次のような組成として上記課題を解決することとした。

【0011】 すなわち、固体電解質層の片面に燃料極、その反対面に空気極を配置した単電池と、隣接するそれぞれの単電池同士を電氣的に直列に接続し、かつ各単電池に燃料と酸化剤ガスを分配するセパレータとを交互に積層してなる固体電解質型燃料電池の燃料極において、該燃料極がセラミックス成分

$Ce_{1-x}MxO_y$ を含む

Mは3価の希土類

$0.05 \leq X \leq 0.15$

$y = 2 - 0.5X$

として固体電解質型燃料電池の燃料極を構成した。

【0012】また前記Mは、例えばGdあるいはSmである。更に、前記燃料極が金属粒子と上記セラミックスを含むサーメットからなることとした。また前記金属を所定の径のNi粒子で構成した。またかかる燃料極を備えて固体電解質型燃料電池を構成した。

【0013】

【発明の実施の形態】以下本発明にかかる燃料極の実施形態について図面に基づいて説明する。

【0014】固体電解質燃料電池は、図1に示す平板状単電池2と、平板状単電池2に供給する燃料ガス、及び酸化剤ガスの通路を有するセパレータ（図示せず）とからなり、平板状単電池2とセパレータとを交互に積層し、セパレータによって形成された各ガスの供給通路から燃料ガスと酸化剤ガスとしての空気を供給し、平板状単電池2で発電を行なわせ、そしてそれぞれの排気通路（図示せず）から排ガスを排気するようにしている。

【0015】平板状単電池2は、図1に示すように固体電解質20を中心にし、その一方の面に燃料極4を、また他方の面に空気極6を備えており、セパレータに形成された収容部（図示せず）内に収容されて順次積層される。

【0016】固体電解質20は、従来の固体電解質と同様の成分で構成され、主に8YSZが用いられている。尚、固体電解質20は8YSZでなく、他の材料でもよい。また空気極6は、固体電解質20と同様、従来と同様の材質から構成されている。

【0017】燃料極4は、図2に示すようにNi粒子とセラミックス粒子からなるサーメット燃料極であり、Ni粒子の粒径は $10\mu m$ 程度で、Ni粒子のサーメット全体に対する体積比は0.4～0.98の範囲である。また、セラミック粒子は、成分が $Ce_{0.9}Sm_{0.1}O_{1.95}$ で構成されている。

【0018】このような構成により、燃料極4はイオン導電性を高く保持したまま、電子導電性を高くすることができ、電極活性の高い平板状単電池2を実現できる。

【0019】次に実験例を示す。

【0020】図4から図6に電極の分極特性のグラフを示す。各グラフのNo1～No6の組成と、試験温度を図3に示す。No1～No3が本発明にかかるセラミックの組成であり、No4～No6が従来例にかかる組成である。

【0021】図4に示すように、セラミックの組成にお

いてXの値が0.2の場合より、本発明にかかるXの値が0.1の場合のほうが、いずれの温度においても数値が低くなっており、このことからXの値が0.1である本発明のほうが、直流分極特性が低く、すなわち電子導電性が良好になっていることがわかる。

【0022】図5に、No1～No3の本発明にかかる組成（Xの値が0.1）の燃料極の交流インピーダンスのグラフを、また図6に、No4～No6の従来例にかかる組成（Xの値が0.2）の燃料極の交流インピーダンスのグラフを示す。グラフの横軸は、インピーダンスの実部であり、縦軸はインピーダンスの虚部である。

【0023】図5と図6とを比較することにより、本発明にかかる組成の燃料極の方が、グラフの描く直径が小さく、燃料極4の電極活性が良好なことがわかる。

【0024】尚、本発明にかかる燃料電池の燃料極が含むセラミックス成分は、上記実施形態に示した値に限るものではなく、 $Ce_{1-x}MxO_y$ であり、かつMは3価の希土類 $0.05 \leq X \leq 0.15$ $y = 2 - 0.5X$ の条件を満たせばよく、また金属粒子もNiに限らず、例えばCo等他の構成金属でもよい。

【0025】

【発明の効果】本発明の燃料電池によれば、燃料電池の燃料極が含むセラミックスの成分を、 $Ce_{1-x}MxO_y$ 、（Mは3価の希土類、 $0.05 \leq X \leq 0.15$ 、 $y = 2 - 0.5X$ ）としたので、イオン導電性に加え、電子導電性を向上させることができることから、電池性能の高い固体電解質燃料電池を実現することができる。

【0026】

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明にかかる平板状単電池の概略構成を説明する図である。

【図2】燃料極の構成を示す図である。

【図3】実験の条件を示す表である。

【図4】本発明にかかる燃料極の直流分極特性を示す図である。

【図5】本発明にかかる燃料極の交流インピーダンスを示す図である。

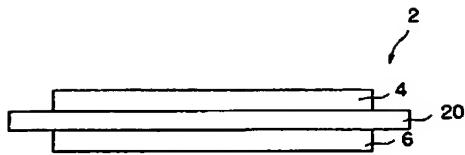
【図6】従来例にかかる燃料極の交流インピーダンスを示す図である。

【図7】従来の燃料極の構成を示す図である。

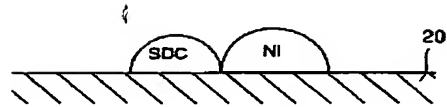
【符号の説明】

- 2 平板状単電池
- 4 燃料極
- 6 空気極
- 10 固体電解質層

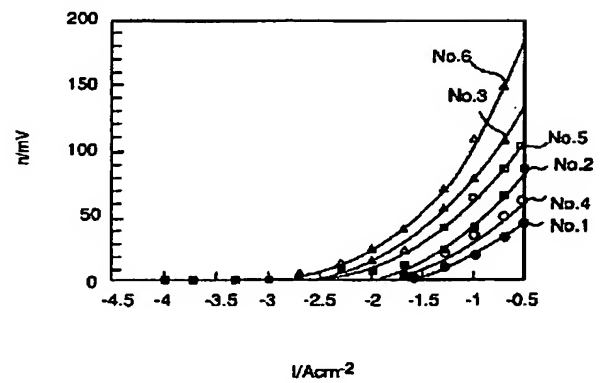
【図1】



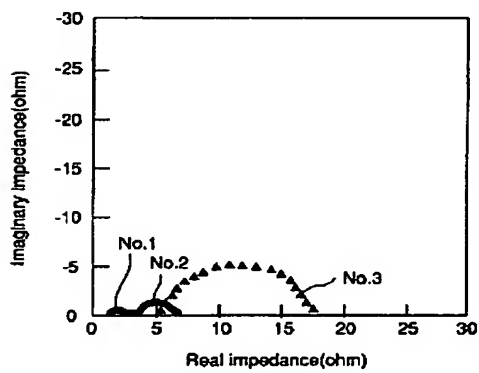
【図2】



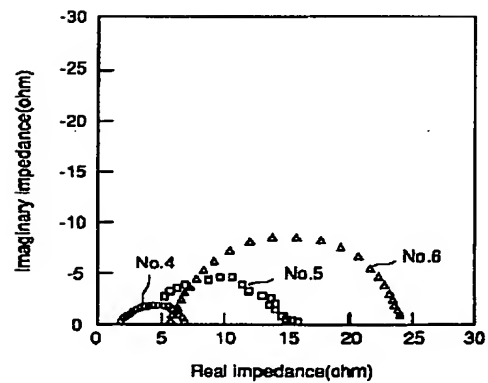
【図4】



【図5】



【図6】



【図7】

